

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-050482

(43)Date of publication of application : 15.02.2002

(51)Int.Cl.

H05B 33/14

C09K 11/06

H05B 33/10

H05B 33/12

(21)Application number : 2000-237154

(71)Applicant : FUJI PHOTO FILM CO LTD

(22)Date of filing : 04.08.2000

(72)Inventor : HIRAI HIROYUKI

(54) ORGANIC LIGHT EMISSION ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic light emission element which can be used effectively for a flat light source such as a full color display, a back light, or the like, and a light source array such as a printer or the like, which can emit a plurality of kinds of light, which has high brightness and high luminous efficiency, of which it is possible to enlarge the area and suppress power consumption, moreover which is easy to manufacture.

SOLUTION: The organic light emission element has a first luminescence layer containing an ortho-metallic complex in the organic luminescence layer which is constituted laminating a transparent electrode, the organic luminescence layer and a back electrode on a substrate, and a second luminescence layer containing a macromolecule luminescent material. A mode is which an ortho-metallic complex is an iridium complex, a mode in which the first luminescence layer of the ortho-metallic complex contains 1 to 20 weight %, a mode in which the first luminescence layer contains a host compound, a mode in which an emission spectrum of the first luminescence layer and an emission spectrum of the second luminescence layer differ, a mode in which the first luminescence layer and the second luminescence layer are formed by a wet film-forming method, or the like, are desirable.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

*** NOTICES ***

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The organic light emitting device characterized by having the first luminous layer in which it comes to carry out the laminating of a transparent electrode, an organic luminous layer, and the back plate on a base material, and this organic luminous layer contains an alt.metal-ized complex, and the second luminous layer containing macromolecule luminescent material.

[Claim 2] The organic light emitting device according to claim 1 whose alt.metal-ized complex is an iridium complex.

[Claim 3] The organic light emitting device according to claim 1 or 2 whose content in the first luminous layer of an alt.metal-ized complex is 1 - 20 % of the weight.

[Claim 4] An organic light emitting device given in either of claims 1-3 in which the first luminous layer contains a host compound.

[Claim 5] An organic light emitting device given in either of claims 1-4 from which the emission spectrum of the first luminous layer and the emission spectrum of the second luminous layer differ.

[Claim 6] An organic light emitting device given in either of claims 1-5 in which the first luminous layer and the second luminous layer were formed by the wet forming-membranes method.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the organic light emitting device which can be used effective in light source arrays of a full color display, a back light, etc., such as the surface light source and a printer, etc.

[0002]

[Description of the Prior Art] An organic light emitting device (it may be called "organic electroluminescence devices" below) By pinching an organic compound layer with a thickness of 1 micrometer or less with two electrodes, and impressing an electrical potential difference between two electrodes It is the spontaneous light type component which an electron is poured in from one electrode (cathode) and a hole is poured in from the electrode (anode plate) of another side, and both recombine in this organic compound layer, and emits light by exciting a neighboring luminescent material. Recently, the researches and developments to which this

organic light emitting device is applied to a flat-panel display, a guide plate, the source of the illumination light, the write-in light source, the reading light source, etc. are done briskly. However, it has the fundamental problem that the current which flows to this organic light emitting device increases, power consumption also becomes large, and generation of heat also becomes large, so that it raises luminescence brightness, since said organic light emitting device is a charge impregnation mold component as mentioned above.

[0003] By the way, the organic light emitting device which used the tris (2-phenyl pyridine) iridium complex for luminescent material is indicated in Appl.Phys.Lett.75 volume besides M.A.Baldo, 4 pages, and (1999), and according to this organic light emitting device, it is indicated that very high external quantum efficiency is acquired. However, since it is manufactured by the vacuum deposition method in the case of this organic light emitting device, manufacture is complicated, and when inferior to effectiveness, there is a problem that large-area-izing is difficult.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] This invention solves said many problems in the former, and makes it a technical problem to attain the following purposes. namely, this invention -- light source arrays of a full color display, a back light, etc., such as the surface light source and a printer, etc. -- effective -- it can use -- two or more luminescence -- possible -- high brightness - luminous efficiency -- high -- large-area-izing -- possible -- power consumption -- it can control -- moreover -- manufacture -- it aims at offering an easy organic light emitting device.

[0005]

[Means for Solving the Problem] Said The means for solving a technical problem is as follows. Namely, <1> It is the organic light emitting device characterized by having the first luminous layer in which it comes to carry out the laminating of a transparent electrode, an organic luminous layer, and the back plate on a base material, and this organic luminous layer contains an alt.metal-ized complex, and the second luminous layer containing macromolecule luminescent material.

<2> An alt.metal-ized complex is an organic light emitting device given in the above <1> which is an iridium complex.

<3> The content in the first luminous layer of an alt.metal-ized complex is an organic light emitting device the above <1> which is 1 - 20 % of the weight, or given in <2>.

<4> The first luminous layer is an organic light emitting device given in either of <3> from the above <1> containing a host compound.

<5> It is an organic light emitting device given in either of <4> from the above <1> with which the emission spectrum of the first luminous layer differs from the emission spectrum of the second luminous layer.

<6> The first luminous layer and the second luminous layer are organic light emitting devices given in either of <5> from the above <1> formed by the wet forming-membranes method.

[0006]

[Embodiment of the Invention] The organic light emitting device of this invention comes to carry out the laminating of a transparent electrode, an organic luminous layer, and the back plate on a base material, and comes to have the layer of others, such as a protective layer, if needed further. in addition -- the concrete example of a compound for forming these each class -- for example -- "-- it is indicated by monthly display ' "organic electroluminescence display" (techno Times company issue)" etc. [98] [Of the October issue separate volume]

[0007] - In organic luminous layer-this invention, said organic luminous layer has the first

luminous layer and the second luminous layer at least. As for said organic luminous layer, it is desirable to be prepared with a hole injection layer, an electron hole transportation layer, an electronic injection layer, an electronic transportation layer, etc.

[0008] -- The first luminous layer -- Said first luminous layer needs to contain an alt.metal-ized complex at least, and it is desirable to contain a host compound and it comes to contain the component of a high molecular compound and others etc. suitably. In addition, in this invention, two or more formation of this first luminous layer may be carried out.

[0009] Said alt.metal-ized complex is the generic name of the compound group indicated by Akio Yamamoto work "organic metal chemistry -foundation and application" 150 page, 232 pages, Shokabo Publishing Co., Ltd. (1982 issue), 71-"written by [Photochemistry and Photophysics of Coordination / Compounds]" H.Yersin 77 page, 135-146 pages and Springer-Verlag (1987 issue), etc. [-] Said organic luminous layer containing this alt.metal-ized complex is advantageous at the point of excelling in luminous efficiency by high brightness.

[0010] As a ligand which forms said alt.metal-ized complex, there are various things, and it is indicated in said each reference, and 2-phenyl pyridine derivative, 7, 8-benzoquinoline derivative, 2-(2-thienyl) pyridine derivative, 2-(1-naphthyl) pyridine derivative, 2-phenyl quinoline derivative, etc. are mentioned as a desirable ligand also in it. These derivatives may have the substituent if needed. Said alt.metal-ized complex may have other ligands other than said ligand. As a metal which forms said alt.metal-ized complex, although Ir, Pd, Pt, etc. are mentioned, iridium (Ir) is especially desirable also in these.

[0011] Also in said alt.metal-ized complex, the compound which emits light from a triplet exciton can use it suitably from a viewpoint of the improvement in luminous efficiency in this invention. Said alt.metal-ized complex may be used by the one-sort independent, and may use two or more sorts together.

[0012] As a content in said first luminous layer of said alt.metal-ized complex, there is especially no limit, and it can be suitably chosen according to the purpose, for example, is 0.1 - 99 % of the weight, and its 1 - 20 % of the weight is desirable. When the content of said alt.metal-ized complex is not 0.1 - 99 % of the weight, the content effectiveness is enough in the content effectiveness fully not being demonstrated and it being 1 - 20 % of the weight, and the wet membrane formation nature of said first luminous layer is desirable at a good point.

[0013] Said host compound is a compound which has the function for energy transfer to arise from the excitation state to said alt.metal-ized complex (for it to act as a guest compound), consequently to make this alt.metal-ized complex emit light. Although there is especially no limit and it can be suitably chosen as said host compound according to the purpose, what has the function of this host compound in the below-mentioned high molecular compound is desirable, and, specifically, a Polly N-vinylcarbazole derivative, a polyvinyl pyridine derivative, a polyvinyl OKISA diazole derivative, a Pori p-phenylene-(p-phenyl) imino-p-phenylene derivative, etc. are mentioned. Said host compound may be used by the one-sort independent, and may use two or more sorts together.

[0014] As said high molecular compound, the compound which especially a limit does not have, and can choose it suitably according to the purpose, for example, has a function as a binder is mentioned, and, specifically, polymethylmethacrylate, polystyrene, a polycarbonate, etc. are mentioned. In this invention, what may function also in these as said host compounds, such as a Polly N-vinylcarbazole derivative, a polyvinyl pyridine derivative, a polyvinyl OKISA diazole derivative, and a Pori p-phenylene-(p-phenyl) imino-p-phenylene derivative, is desirable. These may be used by the one-sort independent and may use two or more sorts together.

[0015] As molecular weight of said high molecular compound, it is 1000 to about 1500000 in weight average molecular weight, and 10000-500000 are desirable. When said high molecular compound is used for said first luminous layer, it is desirable at the point which can carry out spreading formation of this first luminous layer by the wet forming-membranes method at homogeneity. In addition, in this invention, it is low molecular weight compounds, or can be used together with said high molecular compound.

[0016] As a content in said first luminous layer of said high molecular compound, 10 - 99 % of the weight is desirable. When the content of said high molecular compound is not 10 - 99 % of the weight, a low molecular weight compound carries out a deposit etc. in the case of spreading formation of said first luminous layer, and it may be able to stop being able to form in homogeneity.

[0017] As a component of said others, there is especially no limit, and it can be suitably chosen according to the purpose, for example, a low-molecular hole transportation ingredient (thing low-molecular in the inside of the ingredient of the electron hole (hole) transportation layer mentioned later), a low-molecular electronic transportation ingredient (thing low-molecular in the inside of the ingredient of the electronic transportation layer mentioned later), etc. are mentioned. In addition, these ingredients may be said host compounds of said alt.metal-ized complex.

[0018] As thickness of said first luminous layer, 5-200nm is desirable. When said thickness exceeds 200nm, driver voltage may go up remarkably, and if it is less than 5nm, sufficient luminescence brightness may not be obtained.

[0019] -- The second luminous layer -- Said second luminous layer needs to contain macromolecule luminescent material at least, and comes to contain other components etc. suitably. In addition, in this invention, two or more formation of this second luminous layer may be carried out.

[0020] As said giant-molecule luminescent material, the polymer which introduced others and low-molecular coloring matter and tetra-phenyl diamine, and a triphenylamine into the principal chain or the side chain is mentioned. [conjugated system /, such as a Polly p-phenylenevinylene derivative, a polyphenylene derivative, the poly fluorene derivative, and the poly thiophene derivative, / pi] As an example of said macromolecule luminescent material, the ingredient indicated by Adv.Mater.9 volume (No.2) 127 page (1997) besides Nature besides Adv.Mater.8 volume (No.12) 982 page (1996) besides Birgerson and Halls, 376 volumes, 498 pages (August 10, 1995), and Garten, U.S. Pat. No. 5,514,878, the world patent public presentation official report WO 99/No. 48160, etc. is mentioned. These may be used by the one-sort independent and may use two or more sorts together.

[0021] As molecular weight of said macromolecule luminescent material, it is 1000 to about 1500000 in weight average molecular weight, and 5000-500000 are desirable. As a content in said second luminous layer of said macromolecule luminescent material, 10 - 100 % of the weight is desirable. If the content of said macromolecule luminescent material is less than 10 % of the weight, sufficient luminous efficiency or sufficient brightness may not be obtained.

[0022] As a component of said others, there is especially no limit and it can be suitably chosen according to the purpose. For example, a macromolecule hole transportation ingredient (it is the thing of a macromolecule in the ingredient of the electron hole (hole) transportation layer mentioned later), A macromolecule electronic transportation ingredient (it is the thing of a macromolecule in the ingredient of the electronic transportation layer mentioned later), a low-molecular hole transportation ingredient (thing low-molecular in the inside of the ingredient of

the electron hole (hole) transportation layer mentioned later), a low-molecular electronic transportation ingredient (thing low-molecular in the inside of a mentioning-later ingredient), etc. are mentioned. These may be used by the one-sort independent and may use two or more sorts together.

[0023] As thickness of said second luminous layer, 5-200nm is desirable. When said thickness exceeds 200nm, driver voltage may go up remarkably, and if it is less than 5nm, sufficient luminescence brightness may not be obtained.

[0024] - Configuration of an organic luminous layer - As a formation location in said first luminous layer and said organic luminous layer of said second luminous layer, there is especially no limit, and it can be suitably chosen in consideration of the ease of wet membrane formation, a luminescence property, etc., corresponding to the application of this organic light emitting device, the purpose, etc., and any of said first luminous layer and said second luminous layer may be located in said transparent electrode side.

[0025] although there is especially no limit and it can choose suitably according to the application of this organic light emitting device, the purpose, etc. as a formation location in said organic light emitting device of said organic luminous layer -- said transparent electrode top -- or being formed on said back plate is desirable. In this case, this organic luminous layer is formed in the whole surface or the whole surface on said transparent electrode or said back plate. About the configuration of said organic luminous layer, magnitude, and thickness, there is especially no limit and it can be suitably chosen according to the purpose.

[0026] Said electronic injection layer and said electronic transportation layer may be formed between the back plate (it usually acts as cathode) which may form said electron hole (hole) impregnation layer and said electron hole (hole) transportation layer between said organic luminous layers and said transparent electrodes (it usually acts as an anode plate), and is mentioned later, and said organic luminous layer. As concrete lamination, a transparent electrode / organic luminous layer / back plate, a transparent electrode / an electron hole (hole) impregnation layer and an electron hole (hole) transportation layer / organic luminous layer / back plate, a transparent electrode / organic luminous layer / electronic injection layer and an electronic transportation layer / back plate, a transparent electrode / electron hole (hole) impregnation layer and an electron hole (hole) transportation layer / organic luminous layer / electronic injection layer and an electronic transportation layer / back plate, etc. are mentioned.

[0027] -- an electron hole (hole) impregnation layer and an electron hole (hole) transportation layer -- the electron which could pour in the electron hole (hole) from said transparent electrode, or was poured in from said back plate as an ingredient of said electron hole (hole) impregnation layer -- an obstruction -- possible -- ****ing -- for example, a P type inorganic semi-conductor etc. is mentioned suitably. These ingredients are advantageous at the point that thickness (thickness) of an organic light emitting device can be enlarged, and brightness nonuniformity and short-circuit can be improved, without driver voltage making it almost go up.

[0028] as said P type inorganic semi-conductor -- especially -- a limit -- there is nothing -- the purpose -- responding -- suitably -- it can choose -- for example, Si1- XCX ($0 \leq X \leq 1$), CuI, Cu₂S, CuSCN, etc. are mentioned suitably.

[0029] As thickness of said electron hole (hole) impregnation layer, about 5-1000nm is desirable, and 10-500nm is more desirable.

[0030] As an ingredient of said electron hole (hole) transportation layer [whether an electron hole (hole) can be conveyed and] Or if an obstruction is possible in the electron poured in from said back plate, are good. For example, a triazole derivative, an oxazole derivative, an OKISA

diazole derivative, An imidazole derivative, the poly aryl alkane derivative, a pyrazoline derivative, A pyrazolone derivative, a phenylenediamine derivative, an arylamine derivative, an amino permutation chalcone derivative, a styryl anthracene derivative, and full -- me -- non -- a derivative -- A hydrazone derivative, a stilbene derivative, a silazane derivative, an aromatic series tertiary-amine compound, Porphyrin derivatives, such as a styryl amine compound, an aromatic series dimethylidene system compound, and a phthalocyanine, A polysilane system compound, a poly methylphenyl silane derivative, a carbazole derivative, The Pori (N-vinylcarbazole) derivative, an aniline system copolymer, thiophene oligomer, Conductive polymer oligomer, such as the poly thiophene derivative, a polyphenylene derivative, High molecular compounds, such as a polyphenylene vinylene derivative and the poly fluorene derivative, A poly methylphenyl silane derivative, the poly aniline derivative, a butadiene derivative, a benzidine derivative, a polystyrene derivative, a TORIFEERUMETAN derivative, a tetra-phenyl benzine derivative, a starburst polyamine derivative, etc. are mentioned. These may be used by the one-sort independent and may use two or more sorts together.

[0031] In addition, in this invention, it is desirable to prepare a conductive polymer layer in contact with said transparent electrode between said transparent electrode and said electron hole (hole) transportation layer (for it to be said organic luminous layer, when not preparing this electron hole (hole) transportation layer). In this case, it is advantageous at the point that can enlarge thickness of said organic luminous layer and brightness nonuniformity and short-circuit are improved, without driver voltage almost going up.

[0032] As an ingredient of said conductive polymer layer, there is especially no limit, and it can be suitably chosen according to the purpose, for example, the poly aniline derivative of a publication, the poly thiophene derivative, a polypyrrole derivative, etc. are suitably mentioned to WO98 / 05187 grades. These can be used in the condition of having mixed with proton acid (for example, a camphor sulfonic acid, p-toluenesulfonic acid, a styrene sulfonic acid, polystyrene sulfonate, etc.). Moreover, these can also be used if needed, mixing them with other giant molecules (for example, polymethylmethacrylate (PMMA), Polly N-vinylcarbazole (PVCz), etc.). As surface electrical resistance of said conductive polymer layer, it is desirable that they are below 10000ohms / **. As thickness of said conductive polymer layer, 10-1000nm is desirable and 20-200nm is more desirable.

[0033] -- An electronic injection layer and electronic transportation layer -- It is good if an obstruction is possible in the electron hole (hole) which can pour in an electron from said back plate and which could convey this electron or was poured in from said transparent electrode as an ingredient of said electronic injection layer and said electronic transportation layer.

[0034] As an ingredient of said electronic injection layer, n mold organic semiconductors, such as n mold inorganic semi-conductors, such as inorganic insulating materials, such as an aluminum oxide, lithium fluoride, and cesium fluoride, n mold silicon, and a titanium dioxide, and naphthalene tetra-carboxy RIKKUJIMIDO, etc. are mentioned, for example. As thickness of said electronic injection layer, it is about 0.01-10nm.

[0035] As an ingredient of said electronic transportation layer, for example A polyvinyl pyridine derivative, A polyvinyl OKISA diazole derivative, a triazole derivative, a triazine derivative, an oxazole derivative, an OKISA diazole derivative, and full -- me -- non -- a derivative -- nitration full -- me -- non -- a derivative, a deflection ORENIRIDEN methane derivative, and an anthra quinodimethan derivative -- An anthrone derivative, a diphenyl quinone derivative, a perylene tetra-carboxyl derivative, A peri non derivative, an oxine derivative, a quinoline complex derivative, a thiopyran dioxide derivative, A carbodiimide derivative, a full ORENIRIDEN

methane derivative, a JISUCHIRIRU pyrazine derivative, Heterocycle tetracarboxylic acid anhydrides, such as naphthalene perylene, a phthalocyanine derivative, The various metal complexes represented by the metal complex which makes a ligand the metal complex, the metal phthalocyanine, benzooxazole, and benzothiazole of an eight-quinolinol derivative, High molecular compounds, such as the poly thiophene derivative, a polyphenylene derivative, a polyphenylene vinylene derivative, and the poly fluorene derivative, etc. are mentioned. These may be used by the one-sort independent and may use two or more sorts together. As thickness of said electronic transportation layer, it is about 5-200nm.

[0036] -- Formation of an organic luminous layer -- Spreading formation of said organic luminous layer can be especially carried out suitably by the wet forming-membranes methods, such as a dipping method, a spin coating method, the casting method, the bar coat method, and the roll coat method. Moreover, multilayer spreading is also possible by using a solvent properly. In the spreading formation by said wet forming-membranes method, said organic luminous layer can be large-area-ized easily, two or more luminescence is possible, and it is advantageous at the point that the organic light emitting device which was excellent in luminous efficiency with high brightness is obtained. In addition, selection of these wet forming-membranes methods can be suitably performed according to the ingredient of this organic luminous layer.

[0037] When carrying out spreading formation of said organic luminous layer by said wet forming-membranes method, binder resin can be added to this organic luminous layer. As this binder resin, for example In this case, a polyvinyl chloride, the bisphenol A mold polycarbonate, A bisphenol Z mold polycarbonate, polystyrene, polymethylmethacrylate, Poly butyl methacrylate, polyester, polysulfone, polyphenylene oxide, Polybutadiene, Pori (N-vinylcarbazole), hydrocarbon resin, Ketone resin, phenoxy resin, a polyamide, ethyl cellulose, vinyl acetate, butyral resin, acetal resin, ABS plastics, polyurethane, melamine resin, an unsaturated polyester resin, alkyd resin, an epoxy resin, silicone resin, etc. are mentioned. These may be used by the one-sort independent and may use two or more sorts together.

[0038] - Base material - As an ingredient of said base material, the ingredient which does not make moisture penetrate, or the very low ingredient of moisture permeability is desirable. Moreover, the ingredient to which dispersion thru/or attenuation, etc. do not carry out light emitted from said organic luminous layer is desirable. For example, inorganic materials, such as YSZ (zirconia stabilization yttrium) and glass, Polyester, such as polyethylene terephthalate, polybutylene terephthalate, and polyethyleneterephthalate, Organic materials, such as synthetic resin, such as polystyrene, a polycarbonate, polyether sulphone, polyarylate, allyl compound diethylene glycol carbonate, polyimide, the poly cycloolefin, norbornene resin, and Pori (chlorotrifluoroethylene), etc. are mentioned. In the case of said organic material, it is desirable to excel in thermal resistance, dimensional stability, solvent resistance, electric insulation, workability, low permeability, low hygroscopicity, etc. When the ingredient of said transparent electrode is the tin oxide indium (ITO) suitably used as an ingredient of this transparent electrode also in these, an ingredient with the small difference of a lattice constant with this tin oxide indium (ITO) is desirable. These ingredients may be used by the one-sort independent, and may use two or more sorts together.

[0039] About the configuration of said base material, structure, and magnitude, there is especially no limit and it can be suitably chosen according to the application of a light emitting device, the purpose, etc. Generally, as said configuration, it is tabular. As said structure, you may be monolayer structure, and may be a laminated structure, and it may be formed by the single member, and may be formed by two or more members. It is desirable that said base material may

be transparent and colorless, and it is transparent and colorless at the point to which dispersion or attenuation does not carry out light emitted from said luminous layer although you may be colored transparence.

[0040] To said base material, it is desirable to prepare a moisture permeation prevention layer (gas barrier layer) in the front face or rear face (said transparent electrode side). As an ingredient of said moisture permeation prevention layer (gas barrier layer), inorganic substances, such as silicon nitride and oxidation silicon, are mentioned suitably. This moisture permeation prevention layer (gas barrier layer) can be formed for example, by the RF SUPAKKU Ling's method etc. A rebound ace court layer, an under coat layer, etc. may be further prepared in said base material if needed.

[0041] - Transparent electrode - As said transparent electrode, it usually functions as an anode plate which supplies an electron hole to said organic luminous layer, and there is especially no limit about the configuration, structure, and magnitude, and it can choose suitably from well-known electrodes according to the application of an organic light emitting device, the purpose, etc. In addition, what is necessary is to operate said transparent electrode as cathode and just to operate said back plate as an anode plate in this case.

[0042] As an ingredient of said transparent electrode, for example, a metal, an alloy, a metallic oxide, organic conductivity compounds, such mixture, etc. are mentioned suitably, and an ingredient 4.0eV or more has a desirable work function. the tin oxide (ATO --) which doped antimony, a fluorine, etc. as an example of said ingredient FTO, a zinc oxide, indium oxide, a zinc oxide indium (IZO), Conductive metallic oxide, such as a tin oxide indium (ITO) and zinc-oxide aluminum (AZO), metals, such as gold, platinum, silver, chromium, and nickel, -- organic conductivity ingredients, such as inorganic conductivity matter, such as mixture of these metals and conductive metallic oxide or laminated material, copper iodide, and copper sulfide, the poly aniline, the poly thiophene, and polypyrrole, the laminated material of these and ITO, etc. are mentioned further.

[0043] Said transparent electrode can be formed on said substrate according to the method suitably chosen in consideration of fitness with said ingredient from chemical methods, such as physical methods, such as wet methods, such as a printing method and a coating method, vacuum evaporation technique, the sputtering method, and the ion plating method, CVD, and a plasma-CVD method, etc. For example, when choosing ITO as an ingredient of said transparent electrode, formation of this transparent electrode can be performed according to a direct current or a high frequency spatter, vacuum evaporation technique, ion plating, etc. Moreover, when choosing an organic conductivity compound as an ingredient of said transparent electrode, it can carry out according to the wet forming-membranes method.

[0044] Although there is especially no limit and it can choose suitably according to the application of this organic light emitting device, the purpose, etc. as a formation location in said organic light emitting device of said transparent electrode, being formed on said substrate is desirable. in this case, also in said substrate, a front face boils all, it may be formed and this transparent electrode may be formed in that part.

[0045] In addition, the chemical etching by photolithography etc. may perform patterning of said transparent electrode, physical etching by laser etc. may perform it, and it may carry out vacuum deposition, a spatter, etc. in piles, may perform a mask, and may perform it by the lift-off method or print processes.

[0046] Although it can choose suitably as thickness of said transparent electrode according to said ingredient and cannot generally specify, it is usually 10nm - 50 micrometers, and 50nm - 20

micrometers are desirable. As resistance of said transparent electrode, below 103ohms / ** are desirable, and below 102ohms / ** are more desirable. It may be transparent and colorless, and it may be colored transparence, and in order to take out luminescence (fluorescence) from this transparent electrode side, as the permeability, said 60% or more of transparent electrode is desirable, and is more desirable. [70% or more of] This permeability can be measured according to the well-known approach which used the spectrophotometer etc.

[0047] In addition, about said transparent electrode, the Sawada ***** "new expansion of transparence electric conduction film" CMC ** (1999) has a detailed explanation, and these can be applied to this invention. When using a heat-resistant low plastic plate, the transparent electrode which used ITO or IZO and formed membranes at low temperature 150 degrees C or less is desirable.

[0048] -- Back plate -- As said back plate, it functions as cathode which pours an electron into said organic luminous layer, and there is especially no limit about the configuration, structure, and magnitude, and it can choose suitably from well-known electrodes according to the application of a light emitting device, the purpose, etc. In addition, what is necessary is to operate said back plate as an anode plate, and just to operate said transparent electrode as cathode in this case.

[0049] As an ingredient of said back plate, for example, a metal, an alloy, a metallic oxide, electrical conductivity compounds, such mixture, etc. are mentioned, and a thing 4.5eV or less has a desirable work function. As an example of said ingredient, rare earth metals, such as alkali metal (for example, Li, Na, K, Cs, etc.), alkaline earth metal (for example, Mg, calcium, etc.), gold, silver, lead, aluminum, a sodium-potassium alloy, a lithium-aluminium alloy, a magnesium-silver alloy, an indium, and an ytterbium, etc. are mentioned. Although these may be used by the one-sort independent, they can use two or more sorts together suitably from a viewpoint which reconciles stability and electron injection nature.

[0050] Also in these, in respect of electron injection nature, alkali metal and alkaline earth metal are desirable, and the ingredient which makes aluminum a subject in that it excels in preservation stability is desirable. The ingredient which makes said aluminum a subject means an alloy or mixture with aluminum independence or aluminum NIUMI, 0.01 - 10% of the weight of alkali metal, or an alkaline earth metal (for example, a lithium-aluminium alloy, a magnesium-aluminium alloy, etc.).

[0051] In addition, the ingredient of said back plate is explained by JP,2-15595,A and JP,5-121172,A in full detail.

[0052] Formation of said back plate can perform especially a limit according to the method which there is not, and could hold according to the well-known method, for example, was suitably chosen in consideration of fitness with said ingredient from chemical methods, such as physical methods, such as wet methods, such as a printing method and a coating method, vacuum evaporation technique, the sputtering method, and the ion plating method, CVD, and a plasma-CVD method, etc. For example, when choosing a metal etc. as an ingredient of said back plate, its one sort or two sorts or more can be performed to coincidence according to a spatter etc. In addition, the chemical etching by photolithography etc. may perform patterning of said back plate, physical etching by laser etc. may perform it, and it may carry out vacuum deposition, a spatter, etc. in piles, may perform a mask, and may perform it by the lift-off method or print processes.

[0053] Although there is especially no limit and it can choose suitably according to the application of this organic light emitting device, the purpose, etc. as a formation location in said

organic light emitting device of said back plate, being formed on said organic luminous layer is desirable. In this case, this back plate is formed in all or the part on said organic luminous layer. Moreover, the dielectric layer by the fluoride of said alkali metal or said alkaline earth metal etc. may be inserted by the thickness of 0.1-5nm between said back plates and said organic luminous layers. In addition, this dielectric layer can be formed by vacuum evaporation technique, the sputtering method, the ion plating method, etc.

[0054] Although it can choose suitably as thickness of said back plate according to said ingredient and cannot generally specify, it is usually 10nm - 5 micrometers, and 50nm - 1 micrometer is desirable. Said back plate may be transparent and may be opaque. In addition, a transparent back plate can form the ingredient of said back plate thinly in thickness of 1-10nm, and can form it by carrying out the laminating of the conductive ingredient with said still more transparent ITO, IZO, etc.

[0055] - Other layers - As a layer of said others, there is especially no limit, and it can be suitably chosen according to the purpose, for example, a protective layer etc. is mentioned. As said protective layer, the thing of a publication is suitably mentioned to JP,7-85974,A, this No. 192866 [seven to] official report, this No. 22891 [eight to] official report, this No. 275682 [ten to] official report, this No. 106746 [ten to] official report, etc., for example. In said layered product component, said protective layer is formed on this back plate, when the laminating of said base material, said transparent electrode, said organic luminous layer, and said back plate is carried out to this order, and when the laminating of said base material, said back plate, said organic luminous layer, and said transparent electrode is carried out to this order, it is formed on this transparent electrode in that outermost surface, for example. About the configuration of said protective layer, magnitude, and thickness, it can choose suitably, as the ingredient, if it has the function which controls making what may degrade light emitting devices, such as moisture and oxygen, invade thru/or penetrate in this light emitting device, there will be especially no limit, for example, oxidation silicon, a silicon dioxide, a germanium dioxide, diacid-ized germanium, etc. are mentioned.

[0056] As the formation approach of said protective layer, there is especially no limitation, for example, a vacuum deposition method, the sputtering method, a reactive sputtering method, a molecular beam epitaxy method, the ionized cluster beam method, the ion plating method, a plasma polymerization method, a plasma-CVD method, a laser CVD method, a heat CVD method, a coating method, etc. are mentioned.

[0057] Moreover, in this invention, at least, it is desirable to close said organic luminous layer using covering members, such as glass and the Pori (chlorotrifluoroethylene) sheet, in said organic light emitting device, and it may insert a drying agent, a water-repellent fluorine system inactive liquid, etc. into this covering member.

[0058] Furthermore, in this invention, it is the purpose which prevents the invasion of the moisture to each class, or oxygen in said organic light emitting device, and it is also desirable to prepare a closure layer. The copolymer which contains tetrafluoroethylene and at least one sort of comonomers as an ingredient of said closure layer, for example, The fluorine-containing copolymer which has cyclic structure in a copolymerization principal chain, polyethylene, polypropylene, Polymethylmethacrylate, polyimide, polyurea, polytetrafluoroethylene, Polychlorotrifluoroethylene resin, poly dichlorodifluoroethene, Two or more sorts of copolymers chosen from chlorotrifluoroethylene and dichlorodifluoroethene, The absorptivity matter of 1% or more of water absorption, the dampproof matter of 0.1% or less of water absorption, In, Metals, such as Sn, Pb, Au, Cu, Ag, aluminum, Tl, and NI, MgO, SiO, SiO₂, Al₂O₃, GeO, NIO,

CaO, BaO, The metallic oxide of Fe₂O₃, Y₂O₃, and TiO₂ grade, MgF₂, LiF, The thing which made liquefied fluorination carbon, such as AlF₃, a metal fluoride of CaF₂ grade, a perfluoro alkane, a perfluoro amine, and the perfluoro ether, and liquefied fluorination carbon distribute the adsorbent which adsorbs moisture and oxygen is mentioned.

[0059] The organic light emitting device of this invention can obtain luminescence by impressing a direct-current (alternating current component also being included if needed) electrical potential difference (usually the range of 2 volts - 30 volts), or a direct current between said transparent electrodes and said back plates. The approach of a publication can be used for JP,2-148687,A, 6-301355, 5-29080, 7-134558, 8-234685, 8-241047, a U.S. Pat. No. 5828429 number, said 6023308 numbers, the Japanese patent No. 2784615, etc. about the drive of the organic light emitting device of this invention.

[0060] Especially the organic light emitting device of this invention is effective in the application as an optical-resonator mold organic light emitting device. this optical-resonator mold organic light emitting device -- for example -- "-- it is indicated by 105 pages of monthly display ' "organic electroluminescence display" (techno Times company issue)", JP,9-180883,A, etc. [98] [Of the October issue separate volume]

[0061]

[Example] Although the example of the organic light emitting device of this invention is explained below, this invention is not limited at all by these examples.

[0062] (Example 1) Using the glass plate of 2.5cm angle as said base material, this base material was introduced in the vacuum chamber, and SnO₂ content carried out patterning formation of the ITO thin film (thickness of 200nm) as a transparent electrode using the ITO target which is 10 % of the weight by DC magnetron sputtering (conditions: base material temperature of 250 degrees C, 1x10 to 3 Pa oxygen pressure). The surface electrical resistance of a ITO thin film was 7ohm/**.

[0063] Next, the glass plate in which said transparent electrode was formed was put into the wash fountain, and after carrying out IPA washing, oxygen plasma treatment was performed to this. And after carrying out the spin coat of Pori (ethylene dioxythiophene) and the polystyrene sulfonate water distribution object (the product made from BAYER, Baytron P: 1.3% of solid content) to the front face of this transparent electrode, the vacuum drying was carried out to it and 150 degrees C of conductive polymer layers whose thickness is 90nm were formed in it for 1 hour.

[0064] And on this conductive polymer layer, after carrying out the spin coat of the coating liquid which dissolved Pori (N-vinylcarbazole) 160mg and tris (2-phenyl pyridine) iridium complex [Ir(ppy)₃]4mg in 1,2-dichloroethane 10ml, this was dried and the first luminous layer whose thickness is 40nm was formed. On this first luminous layer, furthermore, Pori (9 and 9-G n-octyl fluorene-Cobh sault N, N'-phenyl-screw-N, N'-phenyl benzidine) 50mg, Pori (9 and 9-G n-octyl fluorene) 50mg and 2-(4-biphenyl)-5-(4-tert-buthylphenyl)- 1, 3, and 4-OKISA diazole 25mg After carrying out the spin coat of the coating liquid melted to xylene 20ml, the vacuum drying was carried out at 100 degrees C, and the second luminous layer whose thickness is 50nm was formed.

[0065] Next, the mask was used on this second luminous layer, and vacuum deposition of the aluminum was further carried out to order, respectively so that thickness might be set to 150nm, so that thickness might be set to 50nm in calcium. Then, all over the glove compartment filled with nitrogen, the closure was carried out using glass and UV hardenability adhesives, and organic light emitting device 1A was produced.

[0066] (Example 1 of a comparison) In the example 1, said second luminous layer was not formed, but the spin coat of the coating liquid which dissolved Pori (N-vinylcarbazole) 160mg and tris (2-phenyl pyridine) iridium complex [Ir(ppy)₃]₄mg in 1,2-dichloroethane 10ml was carried out, and organic light emitting device 1B was produced like the example 1 except having made it dry and having formed the organic luminous layer whose thickness is 40nm.

[0067] Said first luminous layer is not formed in an example 1. Pori (9 and 9-G n-octyl fluorene-Cobh sault N, N'-phenyl-screw-N, N'-phenyl benzidine) 50mg, (Example 2 of a comparison) Pori (9 and 9-G n-octyl fluorene) 50mg and 2-(4-biphenyl)-5-(4-tert-buthylphenyl)- 1, 3, and 4-OKISA diazole 25mg After carrying out the spin coat of the coating liquid melted to xylene 20ml, organic light emitting device 1C was produced like the example 1 except having carried out the vacuum drying at 100 degrees C, and having formed the organic luminous layer whose thickness is 50nm.

[0068] (Example 3 of a comparison) In the example 2 of a comparison, organic light emitting device 1D was produced like the example 2 of a comparison except having changed the thickness of an organic luminous layer into 150nm.

[0069] (Example 2) Like the example 1, as a transparent electrode which carried out patterning on the glass substrate, the spin coat of the Pori (p-phenylenevinylene derivative precursor) solution (the product made from CDT, PPV-02) was carried out, the vacuum drying was carried out at 200 degrees C for 2 hours, and the second luminous layer whose thickness is 40nm was formed on the ITO thin film. this second luminous layer top -- Pori (N-vinylcarbazole) 160mg and 2-(4-biphenyl)-5-(4-tert-buthylphenyl)- the spin coat of the coating liquid which dissolved 1, 3, and 4-OKISA diazole 48mg and tris (2-phenyl pyridine) iridium complex [Ir(ppy)₃]₄mg in 1,2-dichloroethane 10ml was carried out, it was made to dry and the first luminous layer whose thickness is 40nm was formed. Vacuum deposition of the aluminum cathode was carried out to order, respectively so that thickness might be set to 1nm in the electronic injection layer which uses a mask and consists of LiF on this first luminous layer, and thickness might be set to 150nm. Then, the closure was carried out like the example 1 and organic light emitting device 2A was produced.

[0070] (Example 4 of a comparison) In the example 2, organic light emitting device 2B was produced like the example 2 except having not formed said first luminous layer, but having carried out the spin coat of the Pori (p-phenylenevinylene derivative precursor) solution (the product made from CDT, PPV-02), having carried out the vacuum drying at 200 degrees C for 2 hours, and having formed the organic luminous layer whose thickness is 40nm.

[0071] Said second luminous layer is not formed in an example 2. Pori (N-vinylcarbazole) 160mg, (Example 5 of a comparison) 2-(4-biphenyl)-5-(4-tert-buthylphenyl)- 1, 3, and 4-OKISA diazole 48mg and tris (2-phenyl pyridine) iridium complex [Ir(ppy)₃]₄mg The spin coat of the coating liquid which dissolved in 1,2-dichloroethane 10ml was carried out, and organic light emitting device 2C was produced like the example 2 except having made it dry and having formed the organic luminous layer whose thickness is 40nm.

[0072] The organic light emitting device <evaluation of an organic light emitting device> Obtained was evaluated as follows. That is, direct current voltage was impressed to each organic light emitting device produced in each example and the example of a comparison, and the electrical potential difference which obtains brightness 3000 cd/m², and the external quantum efficiency at that time were measured. The result was shown in Table 1.

[0073]

[Table 1]

有機発光素子	電圧(V)	外部量子効率(%)
1A(実施例1)	18	4.2
1B(比較例1)	14	0.9
1C(比較例2)	8	0.4
1D(比較例3)	16	0.8
2A(実施例2)	21	4.9
2B(比較例4)	9	0.2
2C(比較例5)	12	1.7

[0074] It is in ** that the organic light emitting device of this invention is high brightness, and high external quantum efficiency (luminous efficiency) is shown from the result of Table 1. Moreover, organic light emitting device 1A of this invention showed the mixing [green and blue both] luminescent color to organic light emitting device 1B of the example 1 of a comparison having shown green luminescence, and organic light emitting device 1C of the example 2 of a comparison having shown blue luminescence. This means that light may be emitted in a wide range wavelength field by the organic light emitting device of this invention by having used the alt.metal-ized complex and macromolecule luminescent material from which the emission spectrum in said first luminous layer and said second luminous layer differs, and high external quantum efficiency (luminous efficiency) is indicated to be, and an emission spectrum differs in said first luminous layer and said second luminous layer, respectively.

[0075] It replaces with a tris (2-phenyl pyridine) iridium complex in an example 2. (Example 3) Tris [2-(2-thienyl) pyridine] iridium complex, a tris (7, 8-benzoquinoline) iridium complex, And when the organic light emitting device of three kinds of **** for the said weight was respectively produced for the screw [2-(4-methylphenyl) pyridine]-monochrome (acetylacetonate) iridium complex, also in these organic light emitting devices, high external quantum efficiency (luminous efficiency) was shown.

[0076]

[Effect of the Invention] said many problems [according to this invention] in the former -- being solvable -- light source arrays of a full color display, a back light, etc., such as the surface light source and a printer, etc. -- effective -- it can use -- two or more luminescence -- possible -- high brightness -- luminous efficiency -- high -- large-area-izing -- possible -- power consumption -- it can control -- moreover -- manufacture -- an easy organic light emitting device can be offered.

[Translation done.]



PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: 2002050482 A

(43) Date of publication of application: 15.02.2002

(51) Int. Cl. H05B 33/14

C09K 11/06, H05B 33/10, H05B 33/12

(21) Application number: 2000237154

(22) Date of filing: 04.08.2000

(71) Applicant: FUJI PHOTO FILM CO LTD

(72) Inventor: HIRAI HIROYUKI

(54) ORGANIC LIGHT EMISSION ELEMENT

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic light emission element which can be used effectively for a flat light source such as a full color display, a back light, or the like, and a light source array such as a printer or the like, which can emit a plurality of kinds of light, which has high brightness and high luminous efficiency, of which it is possible to enlarge the area and suppress power consumption, moreover which is easy to manufacture.

SOLUTION: The organic light emission element has a first luminescence layer containing an ortho-metallic

complex in the organic luminescence layer which is constituted laminating a transparent electrode, the organic luminescence layer and a back electrode on a substrate; and a second luminescence layer containing a macromolecule luminescent material. A mode is which an ortho-metallic complex is an iridium complex, a mode in which the first luminescence layer of the ortho-metallic complex contains 1 to 20 weight %, a mode in which the first luminescence layer contains a host compound, a mode in which an emission spectrum of the first luminescence layer and an emission spectrum of the second luminescence layer differ, a mode in which the first luminescence layer and the second luminescence layer are formed by a wet film-forming method, or the like, are desirable.

COPYRIGHT: (C)2002,JPO

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-50482

(P2002-50482A)

(43)公開日 平成14年2月15日(2002.2.15)

(51)Int.Cl.	識別記号	F I	テームコード(参考)
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B 3 K 0 0 7
C 0 9 K 11/06	6 6 0	C 0 9 K 11/06	6 6 0
	6 8 0		6 8 0
H 0 5 B 33/10		H 0 5 B 33/10	
33/12		33/12	C
審査請求 未請求 請求項の数6 OL (全 9 頁)			

(21)出願番号 特願2000-237154(P2000-237154)

(22)出願日 平成12年8月4日(2000.8.4)

(71)出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社

神奈川県南足柄市中沼210番地

(72)発明者 平井 博幸

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真
フイルム株式会社内

(74)代理人 100079049

弁理士 中島 淳 (外3名)

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB05 AB13 AB18

BB05 CA01 CA05 CB01 CB03

DA00 DB03 EB00 FA00 FA01

FA02

(54)【発明の名称】 有機発光素子

(57)【要約】

【課題】 フルカラーディスプレイ、バックライト等の面光源やプリンター等の光源アレイなどに有効に利用でき、複数の発光が可能であり、高輝度で発光効率が高く、大面積化が可能で消費電力を抑制でき、しかも製造容易な有機発光素子を提供する。

【解決手段】 基材上に透明電極、有機発光層及び背面電極を積層してなり、該有機発光層が、オルトメタル化錯体を含有する第一発光層と、高分子発光材料を含有する第二発光層とを有する有機発光素子である。オルトメタル化錯体がイリジウム錯体である態様、オルトメタル化錯体の第一発光層における含有量が1~20重量%である態様、第一発光層がホスト化合物を含有する態様、第一発光層の発光スペクトルと第二発光層の発光スペクトルとが異なる態様、第一発光層及び第二発光層が湿式成膜法で形成された態様、などが好ましい。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 基材上に透明電極、有機発光層及び背面電極を積層してなり、該有機発光層が、オルトメタル化錯体を含有する第一発光層と、高分子発光材料を含有する第二発光層とを有することを特徴とする有機発光素子。

【請求項2】 オルトメタル化錯体がイリジウム錯体である請求項1に記載の有機発光素子。

【請求項3】 オルトメタル化錯体の第一発光層における含有量が1～20重量%である請求項1又は2に記載の有機発光素子。

【請求項4】 第一発光層がホスト化合物を含有する請求項1から3のいずれかに記載の有機発光素子。

【請求項5】 第一発光層の発光スペクトルと、第二発光層の発光スペクトルとが異なる請求項1から4のいずれかに記載の有機発光素子。

【請求項6】 第一発光層及び第二発光層が湿式成膜法で形成された請求項1から5のいずれかに記載の有機発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、フルカラーディスプレイ、バックライト等の面光源やプリンター等の光源アレイなどに有効に利用できる有機発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】有機発光素子（以下「有機電界発光素子」ということがある）は、1 μ m以下の厚みの有機化合物層を二つの電極で挟持し、両電極間に電圧を印加することにより、一方の電極（陰極）から電子が注入され、他方の電極（陽極）からホールが注入され、両者が該有機化合物層中で再結合し、付近の発光材料を励起することにより発光する、自発光型の素子である。近時、この有機発光素子を、フラットパネルディスプレイ、案内板、照明光源、書き込み光源、読み取り光源などに応用する研究開発が盛んに行われている。しかし、前記有機発光素子は、上述のように電荷注入型素子であるため、発光輝度を上げる程、該有機発光素子に流れる電流が増大し、消費電力も大きくなり、発熱も大きくなるという根本的な問題がある。

【0003】ところで、M.A.Baldo他、Appl.Phys.Lett. 75巻、4頁、(1999年)には、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム錯体を発光材料に用いた有機発光素子が開示されており、該有機発光素子によると、非常に高い外部量子効率を得られることが記載されている。しかしながら、この有機発光素子の場合、真空蒸着法により製造されるため、製造が煩雑で効率に劣る上、大面積化が困難であるという問題がある。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、従来における前記諸問題を解決し、以下の目的を達成することを課

題とする。即ち、本発明は、フルカラーディスプレイ、バックライト等の面光源やプリンター等の光源アレイなどに有効に利用でき、複数の発光が可能であり、高輝度で発光効率が高く、大面積化が可能で消費電力を抑制でき、しかも製造容易な有機発光素子を提供することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】前記課題を解決するための手段は、以下の通りである。即ち、

<1> 基材上に透明電極、有機発光層及び背面電極を積層してなり、該有機発光層が、オルトメタル化錯体を含有する第一発光層と、高分子発光材料を含有する第二発光層とを有することを特徴とする有機発光素子である。

<2> オルトメタル化錯体がイリジウム錯体である前記<1>に記載の有機発光素子である。

<3> オルトメタル化錯体の第一発光層における含有量が1～20重量%である前記<1>又は<2>に記載の有機発光素子である。

<4> 第一発光層がホスト化合物を含有する前記<1>から<3>のいずれかに記載の有機発光素子である。

<5> 第一発光層の発光スペクトルと、第二発光層の発光スペクトルとが異なる前記<1>から<4>のいずれかに記載の有機発光素子である。

<6> 第一発光層及び第二発光層が湿式成膜法で形成された前記<1>から<5>のいずれかに記載の有機発光素子である。

【0006】

【発明の実施の形態】本発明の有機発光素子は、基材上に透明電極、有機発光層及び背面電極を積層してなり、更に必要に応じて保護層等のその他の層を有してなる。なお、これらの各層を形成するための具体的な化合物例については、例えば「月刊ディスプレイ '98 10月号別冊の『有機ELディスプレイ』(テクノタイムズ社発行)」などに記載されている。

【0007】—有機発光層—

本発明において、前記有機発光層は、第一発光層と、第二発光層とを少なくとも有する。前記有機発光層は、正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、等と共に設けられるのが好ましい。

【0008】—第一発光層—

前記第一発光層は、オルトメタル化錯体を少なくとも含有する必要がある、ホスト化合物を含有するのが好ましく、高分子化合物、その他の成分等を適宜含有してなる。なお、本発明においては該第一発光層が複数形成されていてもよい。

【0009】前記オルトメタル化錯体とは、例えば、山本明夫著「有機金属化学—基礎と応用—」150頁、232頁、裳華房社(1982年発行)や、H. Yersin著「Photochemistry and P

hotophysics of Coordination Compounds」71～77頁、135～146頁、Springer-Verlag社(1987年発行)等に記載されている化合物群の総称である。該オルトメタル化錯体を含む前記有機発光層は、高輝度で発光効率に優れる点で有利である。

【0010】前記オルトメタル化錯体を形成する配位子としては、種々のものがあり、前記各文献中にも記載されているが、その中でも好ましい配位子としては、2-フェニルピリジン誘導体、7, 8-ベンゾキノリン誘導体、2-(2-チエニル)ピリジン誘導体、2-(1-ナフチル)ピリジン誘導体、2-フェニルキノリン誘導体等が挙げられる。これらの誘導体は、必要に応じて置換基を有していてもよい。前記オルトメタル化錯体は、前記配位子のほかに、他の配位子を有していてもよい。前記オルトメタル化錯体を形成する金属としては、Ir、Pd、Pt等が挙げられるが、これらの中でもイリジウム(Ir)が特に好ましい。

【0011】前記オルトメタル化錯体の中でも、三重項励起子から発光する化合物が本発明においては発光効率向上の観点から好適に使用することができる。前記オルトメタル化錯体は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0012】前記オルトメタル化錯体の前記第一発光層における含有量としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、0.1～99重量%であり、1～20重量%が好ましい。前記オルトメタル化錯体の含有量が0.1～99重量%でない場合にはその含有効果が十分に発揮されないことがあり、1～20重量%であるとその含有効果が十分であり、前記第一発光層の湿式成膜性が良好である点で好ましい。

【0013】前記ホスト化合物とは、その励起状態から前記オルトメタル化錯体(ゲスト化合物として作用する)へエネルギー移動が起こり、その結果、該オルトメタル化錯体を発光させる機能を有する化合物のことである。前記ホスト化合物としては、特に制限はなく目的に応じて適宜選択することができるが、後述の高分子化合物の中で該ホスト化合物の機能を有するものが好ましく、具体的には、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体、ポリビニルピリジン誘導体、ポリビニルオキサジアゾール誘導体、ポリp-フェニレンー(p-フェニル)イミノ-p-フェニレン誘導体などが挙げられる。前記ホスト化合物は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0014】前記高分子化合物としては、特に制限はなく目的に応じて適宜選択することができ、例えば、バインダーとしての機能を有する化合物などが挙げられ、具体的には、ポリメチルメタクリレート、ポリスチレン、ポリカーボネートなどが挙げられる。本発明においては、これらの中でも、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘

導体、ポリビニルピリジン誘導体、ポリビニルオキサジアゾール誘導体、ポリp-フェニレンー(p-フェニル)イミノ-p-フェニレン誘導体など、前記ホスト化合物として機能し得るものが好ましい。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0015】前記高分子化合物の分子量としては、重量平均分子量で1000～1500000程度であり、10000～500000が好ましい。前記高分子化合物を前記第一発光層に用いると、該第一発光層を湿式成膜法で均一に塗布形成することができる点で好ましい。なお、本発明においては、低分子化合物どうして又は前記高分子化合物と一緒に使用することができる。

【0016】前記高分子化合物の前記第一発光層における含有量としては、10～99重量%が好ましい。前記高分子化合物の含有量が10～99重量%でない場合には、前記第一発光層の塗布形成の際に低分子化合物が析出等してしまい、均一に形成することができなくなることがある。

【0017】前記その他の成分としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、低分子ホール輸送材料(後述する正孔(ホール)輸送層の材料の中で低分子のもの)、低分子電子輸送材料(後述する電子輸送層の材料の中で低分子のもの)、などが挙げられる。なお、これらの材料が前記オルトメタル化錯体の前記ホスト化合物であってもよい。

【0018】前記第一発光層の厚みとしては、5～200nmが好ましい。前記厚みが、200nmを超えると駆動電圧が著しく上昇してしまうことがあり、5nm未満であると十分な発光輝度が得られないことがある。

【0019】—第二発光層—
前記第二発光層は、高分子発光材料を少なくとも含有する必要がある、その他の成分等を適宜含有してなる。なお、本発明においては該第二発光層が複数形成されていてもよい。

【0020】前記高分子発光材料としては、ポリ-p-フェニレンビニレン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリチオフェン誘導体等の π 共役系の他、低分子色素とテトラフェニルジアミンやトリフェニルアミンを主鎖や側鎖に導入したポリマー、などが挙げられる。前記高分子発光材料の具体例としては、Birgerson他、Adv.Mater.8巻(No.12)982頁(1996年)、Halls他、Nature、376巻、498頁(1995年8月10日)、Garten他、Adv.Mater.9巻(No.2)127頁(1997年)、米国特許第5,514,878号、世界特許公開公報WO99/48160号、等に記載された材料が挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0021】前記高分子発光材料の分子量としては、重量平均分子量で1000～1500000程度であり、5000～500000が好ましい。前記高分子発光材

料の前記第二発光層における含有量としては、10～100重量%が好ましい。前記高分子発光材料の含有量が10重量%未満であると、十分な発光効率や輝度が得られないことがある。

【0022】前記その他の成分としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、高分子ホール輸送材料（後述する正孔（ホール）輸送層の材料の中で高分子のもの）、高分子電子輸送材料（後述する電子輸送層の材料の中で高分子のもの）、低分子ホール輸送材料（後述する正孔（ホール）輸送層の材料の中で低分子のもの）、低分子電子輸送材料（後述するの材料の中で低分子のもの）、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0023】前記第二発光層の厚みとしては、5～200nmが好ましい。前記厚みが、200nmを超えると駆動電圧が著しく上昇してしまうことがあり、5nm未満であると十分な発光輝度が得られないことがある。

【0024】—有機発光層の構成—

前記第一発光層及び前記第二発光層の前記有機発光層における形成位置としては、特に制限はなく、該有機発光素子の用途、目的等に応じて、あるいは湿式成膜の容易さ、発光特性等を考慮して、適宜選択することができ、前記第一発光層及び前記第二発光層のいずれが前記透明電極側に位置していてもよい。

【0025】前記有機発光層の前記有機発光素子における形成位置としては、特に制限はなく、該有機発光素子の用途、目的等に応じて適宜選択することができるが、前記透明電極上に又は前記背面電極上に形成されるのが好ましい。この場合、該有機発光層は、前記透明電極上又は前記背面電極上の全面又は一面に形成される。前記有機発光層の形状、大きさ、厚み等については、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができる。

【0026】前記有機発光層と前記透明電極（通常、陽極として作用する）との間には、前記正孔（ホール）注入層及び前記正孔（ホール）輸送層を形成してもよく、また、後述する背面電極（通常、陰極として作用する）と前記有機発光層との間に前記電子注入層及び前記電子輸送層を形成してもよい。具体的な層構成としては、透明電極／有機発光層／背面電極、透明電極／正孔（ホール）注入層・正孔（ホール）輸送層／有機発光層／背面電極、透明電極／有機発光層／電子注入層・電子輸送層／背面電極、透明電極／正孔（ホール）注入層・正孔（ホール）輸送層／有機発光層／電子注入層・電子輸送層／背面電極、等が挙げられる。

【0027】—正孔（ホール）注入層及び正孔（ホール）輸送層—

前記正孔（ホール）注入層の材料としては、前記透明電極から正孔（ホール）を注入可能であるか、あるいは、前記背面電極から注入された電子を障壁可能であればよ

く、例えば、P型無機半導体などが好適に挙げられる。これらの材料は、駆動電圧がほとんど上昇させることなく、有機発光素子の膜厚（層厚）を大きくさせることができ、輝度ムラやショートを改善することができる点で有利である。

【0028】前記P型無機半導体としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、 $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ ($0 \leq x \leq 1$)、 CuI 、 Cu_2S 、 CuSCN 、などが好適に挙げられる。

【0029】前記正孔（ホール）注入層の厚みとしては、5～1000nm程度が好ましく、10～500nmがより好ましい。

【0030】前記正孔（ホール）輸送層の材料としては、正孔（ホール）を輸送可能であるか、あるいは、前記背面電極から注入された電子を障壁可能であればよく、例えば、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ボリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリアルアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、フタロシアニン等のボルフィリン誘導体、ポリシラン系化合物、ポリメチルフェニルシラン誘導体、カルバゾール誘導体、ポリ（N-ビニルカルバゾール）誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン誘導体等の導電性高分子オリゴマー、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等の高分子化合物、ポリメチルフェニルシラン誘導体、ポリアニリン誘導体、プタジエン誘導体、ベンジジン誘導体、ポリスチレン誘導体、トリフェルメタン誘導体、テトラフェニルベンジン誘導体、スターバーストポリアミン誘導体、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0031】なお、本発明においては、前記透明電極と前記正孔（ホール）輸送層（該正孔（ホール）輸送層を設けないときは前記有機発光層）との間に、前記透明電極に接して導電性高分子層を設けるのが好ましい。この場合、駆動電圧がほとんど上昇することなく、前記有機発光層の厚みを大きくすることができ、輝度ムラやショートが改善される点で有利である。

【0032】前記導電性高分子層の材料としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、WO98/05187等に記載のポリアニリン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリピロール誘導体などが好適に挙げられる。これらは、プロトン酸（例えば、樟脳スルホン酸、p-トルエンスルホン酸、スチレンスルホン酸、ポリスチレンスルホン酸等）と混合した状態

で使用することができる。また、これらは、必要に応じて他の高分子（例えば、ポリメチルメタクリレート（PMMA）、ポリ-N-ビニルカルバゾール（PVCz）等）と混合して使用することもできる。前記導電性高分子層の表面抵抗としては、 $10000\Omega/\square$ 以下であるのが好ましい。前記導電性高分子層の厚みとしては、 $10\sim1000\text{nm}$ が好ましく、 $20\sim200\text{nm}$ がより好ましい。

【0033】—電子注入層及び電子輸送層—

前記電子注入層及び前記電子輸送層の材料としては、前記背面電極から電子を注入可能である、該電子を輸送可能である、あるいは、前記透明電極から注入された正孔（ホール）を障壁可能であればよい。

【0034】前記電子注入層の材料としては、例えば、酸化アルミニウム、フッ化リチウム、フッ化セシウム等の無機絶縁材料、n型シリコン、二酸化チタン等のn型無機半導体、ナフタレンテトラカルボキシリックジイミド等のn型有機半導体、などが挙げられる。前記電子注入層の厚みとしては、 $0.01\sim10\text{nm}$ 程度である。

【0035】前記電子輸送層の材料としては、例えば、ポリビニルピリジン誘導体、ポリビニルオキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ペリレンテトラカルボキシル誘導体、ペリノン誘導体、オキシシン誘導体、キノリン錯体誘導体、チオピランジオキサイド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フクロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフクロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等の高分子化合物、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。前記電子輸送層の厚みとしては、 $5\sim200\text{nm}$ 程度である。

【0036】—有機発光層の形成—

前記有機発光層は、ディッピング法、スピンコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の湿式成膜法により特に好適に塗布形成することができる。また溶媒を使い分けることにより多層塗布も可能である。前記湿式成膜法による塗布形成の場合、前記有機発光層を容易に大面積化することができ、複数の発光が可能で、高輝度で発光効率に優れた有機発光素子が得られる点で有利である。なお、これらの湿式成膜法の選択は、該有機発光層の材料に応じて適宜行うことができる。

【0037】前記有機発光層を前記湿式成膜法で塗布形成する場合、該有機発光層には、バインダー樹脂を添加することができる。この場合、該バインダー樹脂としては、例えば、ポリ塩化ビニル、ビスフェノールA型ポリカーボネート、ビスフェノールZ型ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ブチラール樹脂、アセタール樹脂、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0038】—基材—

前記基材の材料としては、水分を透過させない材料又は水分透過率の極めて低い材料が好ましく、また、前記有機発光層から発せられる光を散乱乃至減衰等させることのない材料が好ましく、例えば、YSZ（ジルコニア安定化イットリウム）、ガラス等の無機材料、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホン、ポリアリレート、アリルジグリコールカーボネート、ポリイミド、ポリシクロオレフィン、ノルボルネン樹脂、ポリ（クロロトリフルオロエチレン）等の合成樹脂等の有機材料、などが挙げられる。前記有機材料の場合、耐熱性、寸法安定性、耐溶剤性、電気絶縁性、加工性、低通気性、低吸湿性等に優れていることが好ましい。これらの中でも、前記透明電極の材料が該透明電極の材料として好適に使用される酸化錫インジウム（ITO）である場合には、該酸化錫インジウム（ITO）との格子定数の差が小さい材料が好ましい。これらの材料は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0039】前記基材の形状、構造、大きさ等については、特に制限はなく、発光素子の用途、目的等に応じて適宜選択することができる。一般的には、前記形状としては、板状である。前記構造としては、単層構造であってもよいし、積層構造であってもよく、また、単一部材で形成されていてもよいし、2以上の部材で形成されていてもよい。前記基材は、無色透明であってもよいし、有色透明であってもよいが、前記発光層から発せられる光を散乱あるいは減衰等させることがない点で、無色透明であるのが好ましい。

【0040】前記基材には、その表面又は裏面（前記透明電極側）に、透湿防止層（ガスバリア層）を設けるのが好ましい。前記透湿防止層（ガスバリア層）の材料としては、窒化珪素、酸化珪素などの無機物が好適に挙げられる。該透湿防止層（ガスバリア層）は、例えば、高

周波スパックリング法などにより形成することができる。前記基材には、更に必要に応じて、ハードコート層、アンダーコート層などを設けてもよい。

【0041】—透明電極—

前記透明電極としては、通常、前記有機発光層に正孔を供給する陽極として機能し、その形状、構造、大きさ等については特に制限はなく、有機発光素子の用途、目的等に応じて公知の電極の中から適宜選択することができる。なお、前記透明電極を陰極として機能させてもよく、この場合、前記背面電極を陽極として機能させればよい。

【0042】前記透明電極の材料としては、例えば、金属、合金、金属酸化物、有機導電性化合物、これらの混合物等が好適に挙げられ、仕事関数が4.0 eV以上の材料が好ましい。前記材料の具体例としては、アンチモンやフッ素等をドーパした酸化錫(ATO、FTO)、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化亜鉛インジウム(IZO)、酸化錫インジウム(ITO)、酸化亜鉛アルミニウム(AZO)等の導電性金属酸化物、金、白金、銀、クロム、ニッケル等の金属、更にこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物又は積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロール等の有機導電性材料、これらとITOとの積層物、などが挙げられる。

【0043】前記透明電極は、例えば、印刷方式、コーティング方式等の湿式方式、真空蒸着法、スパックリング法、イオンプレーティング法等の物理的方式、CVD、プラズマCVD法等の化学的方式、などの中から前記材料との適性を考慮して適宜選択した方式に従って前記基材上に形成することができる。例えば、前記透明電極の材料としてITOを選択する場合には、該透明電極の形成は、直流あるいは高周波スパッタ法、真空蒸着法、イオンプレーティング等に従って行うことができる。また、前記透明電極の材料として有機導電性化合物を選択する場合には、湿式成膜法に従って行うことができる。

【0044】前記透明電極の前記有機発光素子における形成位置としては、特に制限はなく、該有機発光素子の用途、目的等に応じて適宜選択することができるが、前記基材上に形成されるのが好ましい。この場合、該透明電極は、前記基材における一方の表面の全部に形成されていてもよく、その一部に形成されていてもよい。

【0045】なお、前記透明電極のパターニングは、フォトリソグラフィなどによる化学的エッチングにより行なってもよいし、レーザーなどによる物理的エッチングにより行ってもよく、また、マスクを重ねて真空蒸着やスパッタ等を行ってもよいし、リフトオフ法や印刷法により行ってもよい。

【0046】前記透明電極の厚みとしては、前記材料に応じて適宜選択することができ、一概に規定することは

できないが、通常10 nm～50 μmであり、50 nm～20 μmが好ましい。前記透明電極の抵抗値としては、 $10^3 \Omega/\square$ 以下が好ましく、 $10^2 \Omega/\square$ 以下がより好ましい。前記透明電極は、無色透明であってもよいし、有色透明であってもよく、また、該透明電極側から発光(蛍光)を取り出すためには、その透過率としては、60%以上が好ましく、70%以上がより好ましい。この透過率は、分光光度計等を用いた公知の方法に従って測定することができる。

【0047】なお、前記透明電極については、沢田豊監修「透明導電膜の新展開」シーエムシー刊(1999)に詳述があり、これらを本発明に適用することができる。耐熱性の低いプラスチック基板を用いる場合、ITO又はIZOを使用し、150℃以下の低温で成膜した透明電極が好ましい。

【0048】—背面電極—

前記背面電極としては、前記有機発光層に電子を注入する陰極として機能し、その形状、構造、大きさ等については特に制限はなく、発光素子の用途、目的等に応じて公知の電極の中から適宜選択することができる。なお、前記背面電極を陽極として機能させてもよく、この場合、前記透明電極を陰極として機能させればよい。

【0049】前記背面電極の材料としては、例えば、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、これらの混合物などが挙げられ、仕事関数が4.5 eV以下のものが好ましい。前記材料の具体例としては、アルカリ金属(例えば、Li、Na、K、Cs等)、アルカリ土類金属(例えばMg、Ca等)、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム—カリウム合金、リチウム—アルミニウム合金、マグネシウム—銀合金、インジウム、イッテルビウム等の希土類金属、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいが、安定性と電子注入性とを両立させる観点からは、2種以上を好適に併用することができる。

【0050】これらの中でも、電子注入性の点で、アルカリ金属やアルカリ土類金属が好ましく、保存安定性に優れる点で、アルミニウムを主体とする材料が好ましい。前記アルミニウムを主体とする材料とは、アルミニウム単独、又はアルミニウムと0.01～10重量%のアルカリ金属若しくはアルカリ土類金属との合金若しくは混合物(例えば、リチウム—アルミニウム合金、マグネシウム—アルミニウム合金など)をいう。

【0051】なお、前記背面電極の材料については、特開平2-15595号公報、特開平5-121172号公報に詳述されている。

【0052】前記背面電極の形成は、特に制限はなく、公知の方式に従って行うことができ、例えば、印刷方式、コーティング方式等の湿式方式、真空蒸着法、スパックリング法、イオンプレーティング法等の物理的方式、CVD、プラズマCVD法等の化学的方式、などの

中から前記材料との適性を考慮して適宜選択した方式に従って行うことができる。例えば、前記背面電極の材料として金属等を選択する場合、その1種又は2種以上を同時にスパッタ法等に従って行うことができる。なお、前記背面電極のパターニングは、フォトリソグラフィなどによる化学的エッチングにより行なってもよいし、レーザーなどによる物理的エッチングにより行ってもよく、また、マスクを重ねて真空蒸着やスパッタ等をして行ってもよいし、リフトオフ法や印刷法により行ってもよい。

【0053】前記背面電極の前記有機発光素子における形成位置としては、特に制限はなく、該有機発光素子の用途、目的等に応じて適宜選択することができるが、前記有機発光層上に形成されるのが好ましい。この場合、該背面電極は、前記有機発光層上の全部又は一部に形成される。また、前記背面電極と前記有機発光層との間に前記アルカリ金属又は前記アルカリ土類金属のフッ化物等による誘電体層を0.1～5nmの厚みで挿入してもよい。なお、該誘電体層は、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等により形成することができる。

【0054】前記背面電極の厚みとしては、前記材料に応じて適宜選択することができ、一概に規定することはできないが、通常10nm～5μmであり、50nm～1μmが好ましい。前記背面電極は、透明であってもよいし、不透明であってもよい。なお、透明な背面電極は、前記背面電極の材料を1～10nmの厚みに薄く成膜し、更に前記ITOやIZO等の透明な導電性材料を積層することにより形成することができる。

【0055】—その他の層—

前記その他の層としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、保護層などが挙げられる。前記保護層としては、例えば、特開平7-85974号公報、同7-192866号公報、同8-22891号公報、同10-275682号公報、同10-106746号公報等に記載のものが好適に挙げられる。前記保護層は、前記積層体系素子において、その最表面に、例えば、前記基材、前記透明電極、前記有機発光層、及び前記背面電極がこの順に積層される場合には、該背面電極上に形成され、前記基材、前記背面電極、前記有機発光層、及び前記透明電極がこの順に積層される場合には、該透明電極上に形成される。前記保護層の形状、大きさ、厚み等については、適宜選択することができ、その材料としては、水分や酸素等の発光素子を劣化させ得るものを該発光素子内に侵入乃至透過させるのを抑制する機能を有していれば特に制限はなく、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、酸化ゲルマニウム、二酸化ゲルマニウム、等が挙げられる。

【0056】前記保護層の形成方法としては、特に限定はなく、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反

性スパッタリング法、分子線エビタキシ法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法、などが挙げられる。

【0057】また、本発明においては、前記有機発光素子における少なくとも前記有機発光層を、ガラスやポリ(クロロトリフルオロエチレン)シート等のカバー部材を用いて封止するのが好ましく、また、このカバー部材の中に乾燥剤や撈水性のフッ素系不活性液体等を挿入してもよい。

【0058】更に、本発明においては、前記有機発光素子における各層への水分や酸素の侵入を防止する目的で、封止層を設けるのも好ましい。前記封止層の材料としては、例えば、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のモノマーを含む共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリユリア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレン及びジクロロジフルオロエチレンから選択される2種以上の共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Tl、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等の金属酸化物、MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等の金属フッ化物、パーフルオロアルカン、パーフルオロアミン、パーフルオロエーテル等の液状フッ素化炭素、液状フッ素化炭素に水分や酸素を吸着する吸着剤を分散させたもの、などが挙げられる。

【0059】本発明の有機発光素子は、前記透明電極と前記背面電極との間に直流（必要に応じて交流成分を含んでもよい）電圧（通常2ボルト～30ボルトの範囲）、又は直流電流を印加することにより、発光を得ることができる。本発明の有機発光素子の駆動については、特開平2-148687号、同6-301355号、同5-29080号、同7-134558号、同8-234685号、同8-241047号、米国特許5828429号、同6023308号、日本特許第2784615号、等に記載の方法を利用することができる。

【0060】本発明の有機発光素子は、光共振器型有機発光素子としての用途に特に有効である。該光共振器型有機発光素子については、例えば「月刊ディスプレイ'98 10月号別冊の『有機ELディスプレイ』（テクノタイムズ社発行）」の105頁、特開平9-180883号等に記載されている。

【0061】

【実施例】以下に、本発明の有機発光素子の実施例について説明するが、本発明はこれらの実施例により何ら限

定されるものではない。

【0062】(実施例1) 前記基材として2.5cm角のガラス板を用い、この基材を真空チャンバー内に導入し、 SnO_2 含有率が10重量%であるITOターゲットを用いて、DCマグネトロンスパッタ(条件: 基材温度250℃、酸素圧 1×10^{-3} Pa)により、透明電極としてのITO薄膜(厚み200nm)をパターニング形成した。ITO薄膜の表面抵抗は、 $7 \Omega/\square$ であった。

【0063】次に、前記透明電極を形成したガラス板を洗浄容器に入れ、IPA洗浄した後、これに酸素プラズマ処理を行った。そして、該透明電極の表面に、ポリ(エチレンジオキシチオフェン)・ポリスチレンスルホン酸水分散物(BAYER社製、Baytron P: 固形分1.3%)をスピンコートした後、150℃、1時間、真空乾燥して厚みが90nmの導電性高分子層を形成した。

【0064】そして、この導電性高分子層上に、ポリ(N-ビニルカルバゾール)160mg及びトリス(2-フェニルピリジン)イリジウム錯体 $[\text{Ir}(\text{ppy})_3]$ 4mgを、1,2-ジクロロエタン10mlに溶解した塗布液をスピンコートした後、これを乾燥させて厚みが40nmの第一発光層を形成した。さらに、この第一発光層上に、ポリ(9,9-ジ-n-オクチルフルオレン-コ-ビス-N,N'-フェニル-ビス-N,N'-フェニルベンジジン)50mg、ポリ(9,9-ジ-n-オクチルフルオレン)50mg及び2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール25mgを、キシレン20mlに溶かした塗布液をスピンコートした後、100℃で真空乾燥させて厚みが50nmの第二発光層を形成した。

【0065】次に、この第二発光層上にマスクを用いて、Caを厚みが50nmになるように、さらにAlを厚みが150nmになるように、それぞれ順に真空蒸着した。その後、窒素で満たされたグローブボックス中で、ガラス及びUV硬化性接着剤を用いて封止をして有機発光素子1Aを作製した。

【0066】(比較例1) 実施例1において、前記第二発光層を形成せず、ポリ(N-ビニルカルバゾール)160mg及びトリス(2-フェニルピリジン)イリジウム錯体 $[\text{Ir}(\text{ppy})_3]$ 4mgを、1,2-ジクロロエタン10mlに溶解した塗布液をスピンコートし、乾燥させて厚みが40nmの有機発光層を形成した以外は実施例1と同様にして、有機発光素子1Bを作製した。

【0067】(比較例2) 実施例1において、前記第一発光層を形成せず、ポリ(9,9-ジ-n-オクチルフルオレン-コ-ビス-N,N'-フェニル-ビス-N,N'-フェニルベンジジン)50mg、ポリ(9,9-ジ-n-オクチルフルオレン)50mg及び2-(4-

ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール25mgを、キシレン20mlに溶かした塗布液をスピンコートした後、100℃で真空乾燥させて厚みが50nmの有機発光層を形成した以外は実施例1と同様にして、有機発光素子1Cを作製した。

【0068】(比較例3) 比較例2において、有機発光層の厚みを150nmに変えた以外は比較例2と同様にして、有機発光素子1Dを作製した。

【0069】(実施例2) 実施例1と同様にして、ガラス基板上にパターニングした透明電極としてITO薄膜の上に、ポリ(p-フェニレンビニレン誘導体プレカーサー)溶液(CDT社製、PPV-02)をスピンコートし、200℃で2時間真空乾燥させて厚みが40nmの第二発光層を形成した。この第二発光層上に、ポリ(N-ビニルカルバゾール)160mg、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール48mg及びトリス(2-フェニルピリジン)イリジウム錯体 $[\text{Ir}(\text{ppy})_3]$ 4mgを、1,2-ジクロロエタン10mlに溶解した塗布液をスピンコートし、乾燥させて厚みが40nmの第一発光層を形成した。この第一発光層上に、マスクを用いてLiFからなる電子注入層を厚みが1nmになるように、Al陰極を厚みが150nmになるように、それぞれ順に真空蒸着した。その後、実施例1と同様に封止をして有機発光素子2Aを作製した。

【0070】(比較例4) 実施例2において、前記第一発光層を形成せず、ポリ(p-フェニレンビニレン誘導体プレカーサー)溶液(CDT社製、PPV-02)をスピンコートし、200℃で2時間真空乾燥させて厚みが40nmの有機発光層を形成した以外は実施例2と同様にして、有機発光素子2Bを作製した。

【0071】(比較例5) 実施例2において、前記第二発光層を形成せず、ポリ(N-ビニルカルバゾール)160mg、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール48mg及びトリス(2-フェニルピリジン)イリジウム錯体 $[\text{Ir}(\text{ppy})_3]$ 4mgを、1,2-ジクロロエタン10mlに溶解した塗布液をスピンコートし、乾燥させて厚みが40nmの有機発光層を形成した以外は実施例2と同様にして、有機発光素子2Cを作製した。

【0072】<有機発光素子の評価>得られた有機発光素子を以下のように評価した。即ち、各実施例及び比較例で作製した各有機発光素子に直流電圧を印加し、輝度 3000 cd/m^2 を得る電圧及びそのときの外部量子効率を測定した。その結果を表1に示した。

【0073】

【表1】

有機発光素子	電圧(V)	外部量子効率(%)
1A(実施例1)	18	4.2
1B(比較例1)	14	0.9
1C(比較例2)	8	0.4
1D(比較例3)	16	0.8
2A(実施例2)	21	4.9
2B(比較例4)	9	0.2
2C(比較例5)	12	1.7

【0074】表1の結果から、本発明の有機発光素子は、高輝度で、高い外部量子効率（発光効率）を示すことが明かである。また、比較例1の有機発光素子1Bは緑色発光を示し、比較例2の有機発光素子1Cは青色発光を示したのに対し、本発明の有機発光素子1Aは、緑色と青色の両方が混ざったの発光色を示した。このことは、本発明の有機発光素子では、前記第一発光層と前記第二発光層とにおける発光スペクトルが異なり、高い外部量子効率（発光効率）を示し、また、前記第一発光層と前記第二発光層とにおいて、発光スペクトルが異なるオルトメタル化錯体と高分子発光材料とをそれぞれ用い

たことにより、広範囲の波長領域で発光し得ることを意味している。

【0075】（実施例3）実施例2において、トリス（2-フェニルピリジン）イリジウム錯体に代えて、トリス〔2-（2-チエニル）ピリジン〕イリジウム錯体、トリス（7，8-ベンゾキノリン）イリジウム錯体、及びビス〔2-（4-メチルフェニル）ピリジン〕-モノ（アセチルアセトネート）イリジウム錯体を、各々同重量用いた3種類の有機発光素子を作製したところ、これらの有機発光素子においても、高い外部量子効率（発光効率）を示した。

【0076】

【発明の効果】本発明によると、従来における前記諸問題を解決することができ、フルカラーディスプレイ、バックライト等の面光源やプリンター等の光源アレイなどに有効に利用でき、複数の発光が可能であり、高輝度で発光効率が高く、大面積化が可能で消費電力を抑制でき、しかも製造容易な有機発光素子を提供することができる。